

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

06. 11. 2004

**PRIORITY
DOCUMENT**SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

REC'D 01 DEC 2004

WIPO

PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 103 54 607.3

Anmeldetag: 21. November 2003

Anmelder/Inhaber: Bayer CropScience AG,
40789 Monheim/DE

Bezeichnung: Silylierte Carboxamide

IPC: C 07 F, A 01 N, A 01 P

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 23. September 2004
Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident
Im Auftrag

Wallner

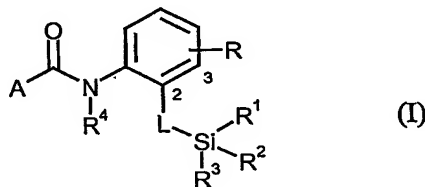
Silylierte Carboxamide

Die vorliegende Erfindung betrifft neue silylierte Carboxamide, mehrere Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen.

Es ist bereits bekannt, dass zahlreiche Carboxamide fungizide Eigenschaften besitzen (vgl. z.B. WO 03/080628, WO 03/010149, EP-A 0 589 301, EP-A 0 545 099). Die Wirksamkeit dieser Stoffe ist gut, lässt aber in manchen Fällen, z.B. bei niedrigen Aufwandmengen zu wünschen übrig.

10

Es wurden nun neue silylierte Carboxamide der Formel (I)



gefunden, in welcher

- R für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, iso-Propyl, Methylthio oder Trifluormethyl steht,
- 15 L für eine direkte Bindung oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes geradkettiges oder verzweigtes Alkyl (Alkandiy), Alkenylen (Alkendiyl) oder Alkinylen (Alkindiy) steht,
- R¹ und R² unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄-alkyl oder C₁-C₆-Halogenalkyl stehen,
- 20 R³ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄-alkyl, C₂-C₈-Alkenyl, C₂-C₈-Alkynyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₂-C₆-Halogenalkenyl, C₂-C₆-Halogenalkinyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl oder Phenylalkyl steht,
- R⁴ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogen-cycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; Halogen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;
- 30 (C₁-C₈-Alkyl)carbonyl, (C₁-C₈-Alkoxy)carbonyl, (C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Cycloalkyl)carbonyl; (C₁-C₆-Halogenalkyl)carbonyl, (C₁-C₆-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Halogen-cycloalkyl)carbonyl mit je-

weils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder $-C(=O)C(=O)R^5$, $-CONR^6R^7$ oder $-CH_2NR^8R^9$ steht,

R^5 für Wasserstoff, C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_8 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Cycloalkyl; C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkoxy, Halogen- C_1 - C_4 -alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Halogen-
5 cycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

R^6 und R^7 unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, C_1 - C_8 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Cycloalkyl; C_1 - C_8 -Halogenalkyl, Halogen- C_1 - C_4 -alkoxy- C_1 - C_4 -alkyl, C_3 - C_8 -Halogen-
cycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

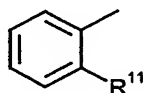
R^6 und R^7 außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenen-
10 falls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C_1 - C_4 -Alkyl
substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Hetero-
cyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel
oder NR^{10} enthalten kann,

R^8 und R^9 unabhängig voneinander für Wasserstoff, C_1 - C_8 -Alkyl, C_3 - C_8 -Cycloalkyl; C_1 - C_8 -Halogen-
15 alkyl, C_3 - C_8 -Halogen-
cycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen
stehen,

R^8 und R^9 außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenen-
falls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C_1 - C_4 -Alkyl
substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Hetero-
20 cyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel
oder NR^{10} enthalten kann,

R^{10} für Wasserstoff oder C_1 - C_6 -Alkyl steht,

A für den Rest der Formel (A1)



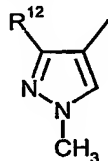
(A1) steht, in welcher

25

R^{11} für Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Cyano, C_1 - C_6 -Alkyl, C_1 - C_4 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -
Halogenalkoxy oder C_1 - C_4 -Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für den Rest der Formel (A2)



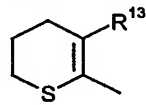
(A2) steht, in welcher

30

R^{12} für Chlor, Iod oder Dichlormethyl steht,

oder

A für den Rest der Formel (A3)

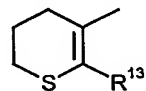


(A3) steht, in welcher

R¹³ für C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

5 oder

A für den Rest der Formel (A4)



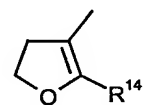
(A4) steht, in welcher

R¹³ für C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

10

A für den Rest der Formel (A5)

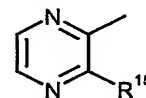


(A5) steht, in welcher

R¹⁴ für C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für den Rest der Formel (A6)



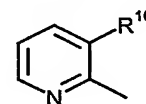
(A6) steht, in welcher

15

R¹⁵ für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für den Rest der Formel (A7)



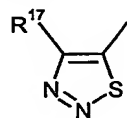
(A7) steht, in welcher

20

R¹⁶ für Halogen, Hydroxy, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio oder C₁-C₄-Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

25 A für den Rest der Formel (A8)

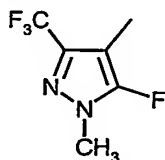


(A8) steht, in welcher

R^{17} für C_1 - C_4 -Alkyl steht,

oder

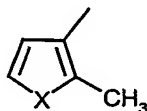
A für den Rest der Formel (A9)



(A9) steht,

5 oder

A für den Rest der Formel (A10)



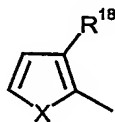
(A10) steht, in welcher

in welcher

X für O (Sauerstoff) oder S (Schwefel) steht,

10 oder

A für den Rest der Formel (A11)



(A11) steht, in welcher

in welcher

X für O (Sauerstoff) oder S (Schwefel) steht,

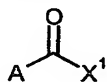
15

R^{18} für Iod oder Methyl steht.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen können gegebenenfalls als Mischungen verschiedener möglicher isomerer Formen, insbesondere von Stereoisomeren, wie z. B. E- und Z-, threo- und erythro-, sowie optischen Isomeren, gegebenenfalls aber auch von Tautomeren vorliegen. Es werden sowohl die E- als auch die Z-Isomeren, wie auch die threo- und erythro-, sowie die optischen Isomeren, beliebige Mischungen dieser Isomeren, sowie die möglichen tautomeren Formen beansprucht.

Weiterhin wurde gefunden, dass man silylierte Carboxamide der Formel (I) erhält, indem man

a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



(II)

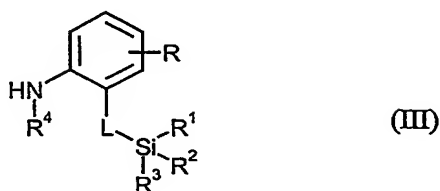
25

in welcher

X^1 für Halogen oder Hydroxy steht und

A die oben angegebenen Bedeutungen hat,

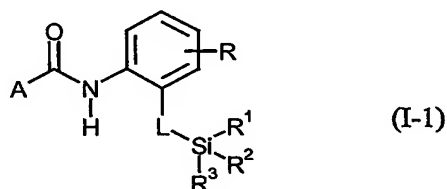
mit Aminen der Formel (III)



in welcher R, L, R¹, R², R³ und R⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Kondensationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

b) silylierte Carboxamide der Formel (I-1)



in welcher R, L, R¹, R², R³ und A die oben angegebenen Bedeutungen haben,
mit Halogeniden der Formel (VIII)



in welcher

X² für Chlor, Brom oder Iod steht,

R^{4a} für C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; Halogen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;

(C₁-C₈-Alkyl)carbonyl, (C₁-C₈-Alkoxy)carbonyl, (C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Cycloalkyl)carbonyl; (C₁-C₆-Halogenalkyl)carbonyl, (C₁-C₆-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Halogenocycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R⁵, -CONR⁶R⁷ oder -CH₂NR⁸R⁹ steht, wobei R⁵, R⁶, R⁷, R⁸ und R⁹ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

Schließlich wurde gefunden, dass die neuen silylierten Carboxamide der Formel (I) sehr gute mikrobi-
 5 Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar sind.

Die erfindungsgemäßen silylierten Carboxamide sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Be-
 vorzugte Restdefinitionen der vorstehenden und nachfolgend genannten Formeln sind im Folgenden
 10 angegeben. Diese Definitionen gelten für die Endprodukte der Formel (I) wie für alle Zwischen-
 produkte gleichermaßen.

- R steht bevorzugt für Wasserstoff.
- R steht außerdem bevorzugt für Fluor, wobei Fluor besonders bevorzugt in 4-, 5- oder 6-
 15 Position, ganz besonders bevorzugt in 4- oder 6-Position, insbesondere in 4-Position des
 Anilidrestes steht [vgl. oben Formel (I)].
- R steht außerdem bevorzugt für Chlor, wobei Chlor besonders bevorzugt in 5-Position des
 Anilidrestes steht [vgl. oben Formel (I)].
- R steht außerdem bevorzugt für Methyl, wobei Methyl besonders bevorzugt in 3-Position des
 Anilidrestes steht [vgl. oben Formel (I)].
- 20 R steht außerdem bevorzugt für Trifluormethyl, wobei Trifluormethyl besonders bevorzugt in
 4- oder 5-Position des Anilidrestes steht [vgl. oben Formel (I)].

- L steht bevorzugt für eine direkte Bindung oder für gegebenenfalls durch Halogen substitu-
 iertes geradkettiges oder verzweigtes C₁-C₆-Alkyl, C₂-C₆-Alkenyl oder C₂-C₆-Alkynyl.
- 25 L steht besonders bevorzugt für eine direkte Bindung oder für -CH₂-, -(CH₂)₂-, -(CH₂)₃-,
 -CH(Me)-, -CH(Me)CH₂-, -CH₂CH(Me)-, -CH(Me)CH(Me)-, -C(Me₂)CH₂-,
 -CH(Me)-(CH₂)₂-, -CH(Me)-(CH₂)₃-, -CH=CH-, -C(Me)=CH- oder -C≡C-.
- L steht ganz besonders bevorzugt für -(CH₂)₂-, -(CH₂)₃-, -CH(Me)-, -CH(Me)CH₂-,
 -CH(Me)-(CH₂)₂-, -CH(Me)-(CH₂)₃-, -CH=CH-, -C(Me)=CH- oder -C≡C-.

30

R¹ und R² stehen unabhängig voneinander bevorzugt für C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₃-Alkoxy-
 C₁-C₃-alkyl oder C₁-C₃-Alkylthio-C₁-C₃-alkyl.

R¹ und R² stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy,
 Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methylthiomethyl, Ethylthio-
 35 methyl, Methylthioethyl oder Ethylthioethyl.

R¹ und R² stehen unabhängig voneinander ganz besonders bevorzugt für Methyl, Methoxy, Methoxymethyl oder Methylthiomethyl.

R¹ und R² stehen insbesondere bevorzugt jeweils für Methyl.

- 5 R³ steht bevorzugt für C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₁-C₃-Alkylthio-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, Phenyl oder Benzyl.
- R³ steht besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, sec-, iso- oder tert-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder iso-Propoxy, n-, sec-, iso- oder tert-Butoxy, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxyethyl, Methylthiomethyl, Ethylthiomethyl, 10 Methylthioethyl, Ethylthioethyl, Cyclopropyl, Phenyl oder Benzyl.
- R³ steht ganz besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, iso- oder tert-Butyl, Methoxy, iso-Propoxy, iso- oder tert-Butoxy, Methoxymethyl, Methylthiomethyl oder Phenyl.
- R³ steht insbesondere bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, iso- oder tert-Butyl, 15 Methoxy, iso-Propoxy, iso- oder tert-Butoxy.
- R³ steht hervorgehoben für Methyl.
- R⁴ steht bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkylsulfinyl, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, 20 C₃-C₆-Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; Halogen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;
- 25 (C₁-C₆-Alkyl)carbonyl, (C₁-C₄-Alkoxy)carbonyl, (C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl)carbonyl, (C₃-C₆-Cycloalkyl)carbonyl; (C₁-C₄-Halogenalkyl)carbonyl, (C₁-C₄-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl)carbonyl, (C₃-C₆-Halogenocycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R⁵, -CONR⁶R⁷ oder -CH₂NR⁸R⁹.
- 30 R⁴ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, 35 Trifluorethyl, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl; Formyl, -CH₂-CHO, -(CH₂)₂-

- CHO, $-\text{CH}_2\text{-CO-CH}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO-CH}_2\text{CH}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO-CH(CH}_3)_2$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO-CH}_3$,
 $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO-CH}_2\text{CH}_3$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO-CH(CH}_3)_2$, $-\text{CH}_2\text{-CO}_2\text{CH}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$,
 $-\text{CH}_2\text{-CO}_2\text{CH(CH}_3)_2$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO}_2\text{CH}_3$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO}_2\text{CH(CH}_3)_2$,
 $-\text{CH}_2\text{-CO-CF}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO-CCl}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO-CH}_2\text{CF}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO-CH}_2\text{CCl}_3$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO-CH}_2\text{CF}_3$,
 5 $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO-CH}_2\text{CCl}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO}_2\text{CH}_2\text{CF}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO}_2\text{CH}_2\text{CCl}_3$,
 $-\text{CH}_2\text{-CO}_2\text{CCl}_2\text{CCl}_3$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO}_2\text{CH}_2\text{CF}_3$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO}_2\text{CH}_2\text{CCl}_3$,
 $-(\text{CH}_2)_2\text{-CO}_2\text{CCl}_2\text{CCl}_3$;
 Methylcarbonyl, Ethylcarbonyl, n-Propylcarbonyl, iso-Propylcarbonyl, tert-Butylcarbonyl,
 Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, tert-Butoxycarbonyl, Cyclopropylcarbonyl; Trifluorme-
 10 thylcarbonyl, Trifluormethoxycarbonyl, oder $-\text{C(=O)C(=O)R}^5$, $-\text{CONR}^6\text{R}^7$ oder $-\text{CH}_2\text{NR}^8\text{R}^9$.
 R⁴ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Methoxymethyl, Formyl,
 $-\text{CH}_2\text{-CHO}$, $-(\text{CH}_2)_2\text{-CHO}$, $-\text{CH}_2\text{-CO-CH}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO-CH}_2\text{CH}_3$, $-\text{CH}_2\text{-CO-CH(CH}_3)_2$,
 $-\text{C(=O)CHO}$, $-\text{C(=O)C(=O)CH}_3$, $-\text{C(=O)C(=O)CH}_2\text{OCH}_3$, $-\text{C(=O)CO}_2\text{CH}_3$,
 $-\text{C(=O)CO}_2\text{CH}_2\text{CH}_3$.
 15
 R⁵ steht bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-
 C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-
 alkyl, C₃-C₆-Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.
 R⁵ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, tert-Butyl,
 20 Methoxy, Ethoxy, n- oder iso-Propoxy, tert-Butoxy, Methoxymethyl, Cyclopropyl; Trifluor-
 methyl, Trifluormethoxy.
 R⁶ und R⁷ stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-
 C₃-alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₃-C₆-
 25 Halogenycycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.
 R⁶ und R⁷ bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, bevorzugt
 einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-
 C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 oder 6 Ringatomen, wobei der Hetero-
 cyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel
 30 oder NR¹⁰ enthalten kann.
 R⁶ und R⁷ stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-
 oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl,
 Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl,
 Trifluorethyl, Trifluormethoxymethyl.
 35 R⁶ und R⁷ bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, besonders
bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor,

Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin, Thiomorpholin oder Piperazin, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch R¹⁰ substituiert sein kann.

- 5 R⁸ und R⁹ stehen unabhängig voneinander bevorzugt für Wasserstoff, C₁-C₆-Alkyl, C₃-C₆-Cycloalkyl; C₁-C₄-Halogenalkyl, C₃-C₆-Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen.

- 10 R⁸ und R⁹ bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, bevorzugt einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 oder 6 Ringatomen, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹⁰ enthalten kann.

- 15 R⁸ und R⁹ stehen unabhängig voneinander besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl; Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Trifluormethoxymethyl.

- 20 R⁸ und R⁹ bilden außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, besonders bevorzugt einen gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Methyl substituierten gesättigten Heterocyclus aus der Reihe Morpholin, Thiomorpholin oder Piperazin, wobei das Piperazin am zweiten Stickstoffatom durch R¹⁰ substituiert sein kann.

- R¹⁰ steht bevorzugt für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl.

- 25 R¹⁰ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl.

A steht bevorzugt für einen der oben angegebenen Reste A1, A2, A5 oder A7.

A steht besonders bevorzugt für den Rest A1.

A steht außerdem besonders bevorzugt für den Rest A2.

- 30 A steht außerdem besonders bevorzugt für den Rest A5.

A steht außerdem besonders bevorzugt für den Rest A6.

A steht außerdem besonders bevorzugt für den Rest A7.

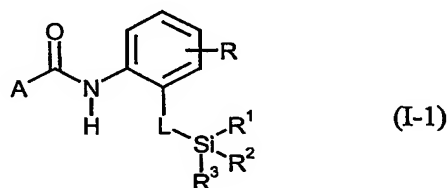
- 35 R¹¹ steht bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₂-Halogenalkyl, C₁-C₂-Halogenalkoxy oder C₁-C₂-Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 5 Fluor, Chlor und/oder Bromatomen.

- 5 R¹¹ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, Methyl, Ethyl, n-Propyl, iso-Propyl, n-Butyl, iso-Butyl, sec-Butyl, tert-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trichlormethoxy, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio oder Trichlormethylthio.
- R¹¹ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Difluormethyl, Trifluormethyl oder Trichlormethyl.
- R¹¹ steht insbesondere bevorzugt für Chlor, Brom, Iod, Methyl, Difluormethyl oder Trifluormethyl.
- 10 R¹² steht bevorzugt für Iod.
- R¹² steht außerdem bevorzugt für Chlor.
- R¹² steht außerdem bevorzugt für Dichlormethyl.
- 15 R¹³ steht bevorzugt für Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor, Chlor und/oder Bromatomen.
- R¹³ steht besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl.
- R¹³ steht ganz besonders bevorzugt für Methyl, Trifluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl.
- 20 R¹⁴ steht bevorzugt für Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor, Chlor und/oder Bromatomen.
- R¹⁴ steht besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl.
- 25 R¹⁴ steht ganz besonders bevorzugt für Methyl, Trifluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl.
- R¹⁴ steht insbesondere bevorzugt für Methyl oder Trifluormethyl.
- 30 R¹⁵ steht bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor, Chlor und/oder Bromatomen.
- R¹⁵ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Trifluormethyl.
- 35 R¹⁶ steht bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, C₁-C₄-Alkyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, C₁-C₂-Halogenalkyl oder C₁-C₂-Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 5 Fluor, Chlor und/oder Bromatomen.

- R^{16} steht besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, n-Propyl, iso-Propyl, n-Butyl, iso-Butyl, sec-Butyl, tert-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl.
- R^{16} steht ganz besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Trifluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl.
- R^{17} steht bevorzugt für Methyl, Ethyl, n-Propyl oder iso-Propyl.
- R^{17} steht besonders bevorzugt Methyl oder Ethyl.
- X steht bevorzugt für O (Sauerstoff).
- X steht außerdem bevorzugt für S (Schwefel).
- R^{18} steht bevorzugt für Iod.
- R^{18} steht außerdem bevorzugt für Methyl.

15

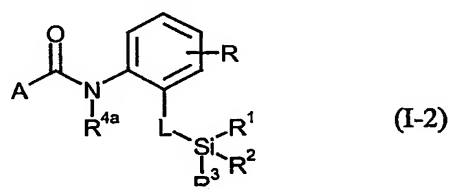
Außerdem hervorgehoben sind Verbindungen der Formel (I-1)



in welcher R, L, R^1 , R^2 , R^3 und A die oben angegebenen Bedeutungen haben.

20

Außerdem hervorgehoben sind Verbindungen der Formel (I-2)



in welcher R, L, R^1 , R^2 , R^3 , R^{4a} und A die oben angegebenen Bedeutungen haben.

25

R^{4a} steht bevorzugt für C_1 - C_6 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkylsulfinyl, C_1 - C_4 -Alkylsulfonyl, C_1 - C_3 -Alkoxy- C_1 - C_3 -alkyl, C_3 - C_6 -Cycloalkyl; C_1 - C_4 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -Halogenalkylthio, C_1 - C_4 -Halogenalkylsulfinyl, C_1 - C_4 -Halogenalkylsulfonyl, Halogen- C_1 - C_3 -alkoxy- C_1 - C_3 -alkyl, C_3 - C_8 -Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl- C_1 - C_3 -alkyl, (C_1 - C_3 -Alkyl)carbonyl- C_1 - C_3 -alkyl, (C_1 - C_3 -Alkoxy)carbonyl- C_1 - C_3 -alkyl; Halo-

gen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;

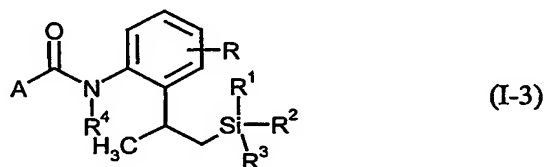
(C₁-C₆-Alkyl)carbonyl, (C₁-C₄-Alkoxy)carbonyl, (C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl)carbonyl, (C₃-C₆-Cycloalkyl)carbonyl; (C₁-C₄-Halogenalkyl)carbonyl, (C₁-C₄-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C₁-C₃-alkoxy-C₁-C₃-alkyl)carbonyl, (C₃-C₆-Halogenocycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R⁵, -CONR⁶R⁷ oder -CH₂NR⁸R⁹, wobei R⁵, R⁶, R⁷, R⁸ und R⁹ die oben angegebenen Bedeutungen haben.

R^{4a} steht besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, n- oder iso-Propyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butyl, Pentyl oder Hexyl, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, n- oder iso-Propylsulfinyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, n- oder iso-Propylsulfonyl, n-, iso-, sec- oder tert-Butylsulfonyl, Methoxymethyl, Methoxyethyl, Ethoxymethyl, Ethoxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Trifluormethyl, Trichlormethyl, Trifluorethyl, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethylsulfinyl, Trifluormethylsulfonyl, Trifluormethoxymethyl; Formyl, -CH₂-CHO, -(CH₂)₂-CHO, -CH₂-CO-CH₃, -CH₂-CO-CH₂CH₃, -CH₂-CO-CH(CH₃)₂, -(CH₂)₂-CO-CH₃, -(CH₂)₂-CO-CH₂CH₃, -(CH₂)₂-CO-CH(CH₃)₂, -CH₂-CO₂CH₃, -CH₂-CO₂CH₂CH₃, -CH₂-CO₂CH(CH₃)₂, -(CH₂)₂-CO₂CH₃, -(CH₂)₂-CO₂CH₂CH₃, -(CH₂)₂-CO₂CH(CH₃)₂, -CH₂-CO-CF₃, -CH₂-CO-CCl₃, -CH₂-CO-CH₂CF₃, -CH₂-CO-CH₂CCl₃, -(CH₂)₂-CO-CH₂CF₃, -(CH₂)₂-CO-CH₂CCl₃, -CH₂-CO₂CH₂CF₃, -CH₂-CO₂CF₂CF₃, -CH₂-CO₂CH₂CCl₃, -CH₂-CO₂CCl₂CCl₃, -(CH₂)₂-CO₂CH₂CF₃, -(CH₂)₂-CO₂CF₂CF₃, -(CH₂)₂-CO₂CH₂CCl₃, -(CH₂)₂-CO₂CCl₂CCl₃;

Methylcarbonyl, Ethylcarbonyl, n-Propylcarbonyl, iso-Propylcarbonyl, tert-Butylcarbonyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, tert-Butoxycarbonyl, Cyclopropylcarbonyl; Trifluormethylcarbonyl, Trifluormethoxycarbonyl, oder -C(=O)C(=O)R⁵, -CONR⁶R⁷ oder -CH₂NR⁸R⁹, wobei R⁵, R⁶, R⁷, R⁸ und R⁹ die oben angegebenen Bedeutungen haben.

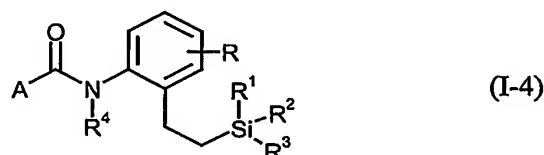
R^{4a} steht ganz besonders bevorzugt für Methyl, Methoxymethyl, Formyl, -CH₂-CHO, -(CH₂)₂-CHO, -CH₂-CO-CH₃, -CH₂-CO-CH₂CH₃, -CH₂-CO-CH(CH₃)₂, -C(=O)CHO, -C(=O)C(=O)CH₃, -C(=O)C(=O)CH₂OCH₃, -C(=O)CO₂CH₃, -C(=O)CO₂CH₂CH₃.

Außerdem hervorgehoben sind Verbindungen der Formel (I-3)



in welcher R, R¹, R², R³, R⁴ und A die oben angegebenen Bedeutungen haben.

Außerdem hervorgehoben sind Verbindungen der Formel (I-4)



in welcher R, R¹, R², R³, R⁴ und A die oben angegebenen Bedeutungen haben.

- 5 Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffreste wie Alkyl oder Alkenyl können, auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie z.B. in Alkoxy, soweit möglich, jeweils geradkettig oder verzweigt sein.

Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei Mehrfachsubstitutionen die Substituenten gleich oder verschieden sein können.

10

Durch Halogen substituierte Reste, wie z.B. Halogenalkyl, sind einfach oder mehrfach halogeniert. Bei mehrfacher Halogenierung können die Halogenatome gleich oder verschieden sein. Halogen steht dabei für Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere für Fluor, Chlor und Brom.

- 15 Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen bzw. Erläuterungen können zwischen den jeweiligen Bereichen und Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden. Sie gelten für die Endprodukte sowie für die Vor- und Zwischenprodukte entsprechend.

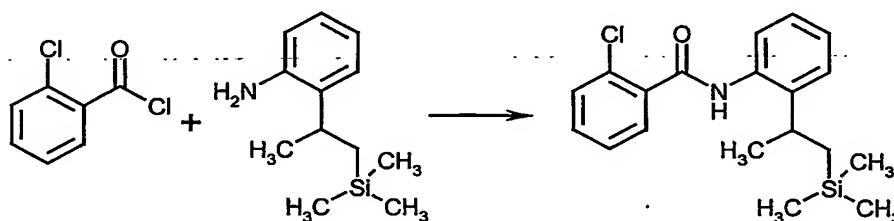
Erläuterungen der Verfahren und Zwischenprodukte

20

Verfahren (a)

Verwendet man beispielsweise 2-Chlorbenzoylchlorid und {2-[1-Methyl-2-(trimethylsilyl)ethyl]phenyl}amin als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

25



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten Carbonsäure-Derivate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) hat A bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits

im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden. X^1 steht bevorzugt für Chlor, Brom oder Hydroxy.

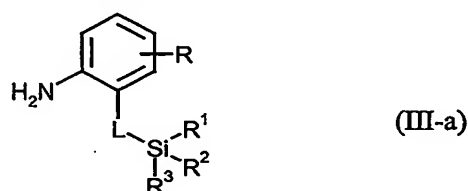
- 5 Carbonsäure-Derivate der Formel (II) sind bekannt und/oder können nach bekannten Methoden erhalten werden (vgl. WO 93/11117, EP-A 0 545 099, EP-A 0 589 301, EP-A 0 589 313 und DE-A 103 25 439.0).

- 10 Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) weiterhin als Ausgangsstoffe benötigten Amine sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) haben R, L, R^1 , R^2 , R^3 und R^4 bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

15

Die Amine der Formel (III) sind bekannt und/oder können auf bekannt Weise erhalten werden (vgl. WO 03/080628 und die Herstellungsbeispiele).

- 20 Amine der Formel (III), in welcher R^4 nicht für Wasserstoff steht, können beispielsweise erhalten werden, indem man Amine der Formel (III-a)



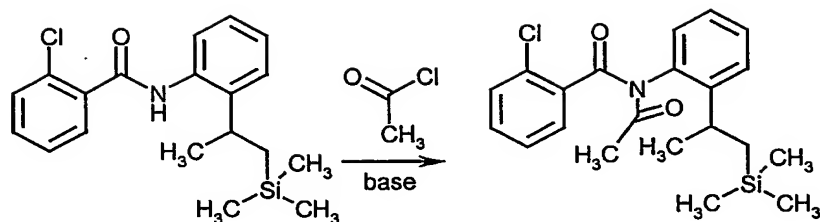
in welcher R, L, R^1 , R^2 und R^3 die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Halogeniden der Formel (VIII)



- 25 in welcher X^2 und R^{4a} die oben angegebenen Bedeutungen haben, umgesetzt [die Reaktionsbedingungen des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) gelten entsprechend].

Verfahren (b)

- 30 Verwendet man 2-Chlor-N-{2-[1-methyl-2-(trimethylsilyl)ethyl]phenyl}benzamid und Acetylchlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) als Ausgangsstoffe benötigten silylierten Carboxamide sind durch die Formel (I-1) allgemein definiert. In dieser Formel (I-1) haben R, L, R¹, R², R³, R⁴ und A bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt, besonders bevorzugt bzw. ganz besonders bevorzugt für diese Reste angegeben wurden.

Die Verbindungen der Formel (I-1) sind erfindungsgemäße Verbindungen und können nach dem Verfahren (a) hergestellt werden.

Reaktionsbedingungen

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder i-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser.

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) kommen alle inerten organischen Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-tert-Amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid.

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Säureakzeptors durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Lithiumdiisopropylamid, Natriummethylat, Natriumethylat, Kalium-tert-butylat, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Ammoniumcarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Das erfindungsgemäße Verfahren (b) wird in Gegenwart einer geeigneten Base durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Lithiumdiisopropylamid, Natriummethylat, Natriumethylat, Kalium-tert-butylat, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Caesiumcarbonat; sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Kondensationsmittels durchgeführt. Als solche kommen alle üblicherweise für derartige Amidierungsreaktionen verwendbaren Kondensationsmittel infrage. Beispielhaft genannt seien Säurehalogenidbildner wie Phosgen, Phosphortribromid, Phosphortrichlorid, Phosphorpentachlorid, Phosphoroxychlorid oder Thionylchlorid; Anhydridbildner wie Chlorameisensäureethylester, Chlorameisensäuremethylester, Chlorameisensäureisopropylester, Chlorameisensäureisobutylester oder Methansulfonylchlorid; Carbodiimide, wie N,N'-Dicyclohexylcarbodiimid (DCC) oder andere übliche Kondensationsmittel, wie Phosphorpentoxid, Polyphosphorsäure, N,N'-Carbonyldiimidazol, 2-Ethoxy-N-ethoxycarbonyl-1,2-dihydrochinolin (EEDQ), Triphenylphosphin/Tetrachlorkohlenstoff oder Brom-tripyrrolidinophosphonium-hexafluorophosphat.

Das erfindungsgemäße Verfahren (a) wird gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators durchgeführt. Beispielsweise genannt seien 4-Dimethylaminopyridin, 1-Hydroxy-benzotriazol oder Dimethylformamid.

5 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) in einem größeren Bereich variiert werden. Im Allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 0°C bis 120°C, besonders bevorzugt bei Temperaturen von 10°C bis 80°C.

10 Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) in einem größeren Bereich variiert werden. Im Allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen von 0°C bis 150°C, vorzugsweise bei Temperaturen von 20°C bis 110°C.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) zur Herstellung der Verbindungen der
15 Formel (I) setzt man pro Mol des Carbonsäure-Derivates der Formel (II) im Allgemeinen 0,8 bis 15 Mol, vorzugsweise 0,8 bis 8 Mol an Amin der Formel (III) und 1 bis 3 Mol eines Säurebindemittels ein.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) setzt man pro Mol an silyliertem Carbox-
20 amid der Formel (I-1) im Allgemeinen 0.2 bis 5 Mol, bevorzugt 0.5 bis 2 Mol eines Halogenids der Formel (VIII) ein.

Wenn nicht anders angegeben, werden alle erfindungsgemäßen Verfahren im Allgemeinen unter
25 Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, unter erhöhtem oder vermindertem Druck – im Allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar – zu arbeiten.

Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur
Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und
im Materialschutz eingesetzt werden.

30

Fungizide lassen sich Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.

Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae,
35 Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomyetaceae einsetzen.

Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise *Xanthomonas campestris* pv. *oryzae*;

Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise *Pseudomonas syringae* pv. *lachrymans*;

5 *Erwinia*-Arten, wie beispielsweise *Erwinia amylovora*;

Pythium-Arten, wie beispielsweise *Pythium ultimum*;

Phytophthora-Arten, wie beispielsweise *Phytophthora infestans*;

Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudoperonospora humuli* oder

Pseudoperonospora cubensis;

10 *Plasmopara*-Arten, wie beispielsweise *Plasmopara viticola*;

Bremia-Arten, wie beispielsweise *Bremia lactucae*;

Peronospora-Arten, wie beispielsweise *Peronospora pisi* oder *P. brassicae*;

Erysiphe-Arten, wie beispielsweise *Erysiphe graminis*;

Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise *Sphaerotheca fuliginea*;

15 *Podosphaera*-Arten, wie beispielsweise *Podosphaera leucotricha*;

Venturia-Arten, wie beispielsweise *Venturia inaequalis*;

Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise *Pyrenophora teres* oder *P. graminea*

(Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);

Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise *Cochliobolus sativus*

20 (Konidienform: *Drechslera*, Syn: *Helminthosporium*);

Uromyces-Arten, wie beispielsweise *Uromyces appendiculatus*;

Puccinia-Arten, wie beispielsweise *Puccinia recondita*;

Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise *Sclerotinia sclerotiorum*;

Tilletia-Arten, wie beispielsweise *Tilletia caries*;

25 *Ustilago*-Arten, wie beispielsweise *Ustilago nuda* oder *Ustilago avenae*;

Pellicularia-Arten, wie beispielsweise *Pellicularia sasakii*;

Pyricularia-Arten, wie beispielsweise *Pyricularia oryzae*;

Fusarium-Arten, wie beispielsweise *Fusarium culmorum*;

Botrytis-Arten, wie beispielsweise *Botrytis cinerea*;

30 *Septoria*-Arten, wie beispielsweise *Septoria nodorum*;

Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise *Leptosphaeria nodorum*;

Cercospora-Arten, wie beispielsweise *Cercospora canescens*;

Alternaria-Arten, wie beispielsweise *Alternaria brassicae*;

Pseudocercospora-Arten, wie beispielsweise *Pseudocercospora herpotrichoides*.

35

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen auch eine starke stärkende Wirkung in Pflanzen auf. Sie

eignen sich daher zur Mobilisierung pflanzeigener Abwehrkräfte gegen Befall durch unerwünschte Mikroorganismen.

- 5 Unter pflanzenstärkenden (resistenzinduzierenden) Stoffen sind im vorliegenden Zusammenhang solche Substanzen zu verstehen, die in der Lage sind, das Abwehrsystem von Pflanzen so zu stimulieren, dass die behandelten Pflanzen bei nachfolgender Inokulation mit unerwünschten Mikroorganismen weitgehende Resistenz gegen diese Mikroorganismen entfalten.

- 10 Unter unerwünschten Mikroorganismen sind im vorliegenden Fall phytopathogene Pilze, Bakterien und Viren zu verstehen. Die erfindungsgemäßen Stoffe können also eingesetzt werden, um Pflanzen innerhalb eines gewissen Zeitraumes nach der Behandlung gegen den Befall durch die genannten Schaderreger zu schützen. Der Zeitraum, innerhalb dessen Schutz herbeigeführt wird, erstreckt sich im allgemeinen von 1 bis 10 Tage, vorzugsweise 1 bis 7 Tage nach der Behandlung der Pflanzen mit den Wirkstoffen.

- 15 Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

- 20 Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Getreidekrankheiten, wie beispielsweise gegen Puccinia-Arten und von Krankheiten im Wein-, Obst- und Gemüseanbau, wie beispielsweise gegen Botrytis-, Venturia- oder Alternaria-Arten, einsetzen.

- 25 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Steigerung des Ernteertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.

- 30 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können gegebenenfalls in bestimmten Konzentrationen und Aufwandmengen auch als Herbizide, zur Beeinflussung des Pflanzenwachstums, sowie zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen verwendet werden. Sie lassen sich gegebenenfalls auch als Zwischen- und Vorprodukte für die Synthese weiterer Wirkstoffe einsetzen.

- 35 Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder

durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützbaeren oder nicht schützbaeren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel
5 verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stängel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

10 Die erfindungsgemäße Behandlung der Pflanzen und Pflanzenteile mit den Wirkstoffen erfolgt direkt oder durch Einwirkung auf deren Umgebung, Lebensraum oder Lagerraum nach den üblichen Behandlungsmethoden, z.B. durch Tauchen, Sprühen, Verdampfen, Vernebeln, Streuen, Aufstreichen und bei Vermehrungsmaterial, insbesondere bei Samen, weiterhin durch ein- oder mehrschichtiges Umhüllen.

15

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu
20 verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikroorganismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien
25 auch Teile von Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung seien als technische Materialien vorzugsweise Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungsflüssigkeiten genannt, besonders bevorzugt Holz.

30

Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vorzugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze, holzverfärbende und holzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und
35 Algen.

Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:

- Alternaria, wie *Alternaria tenuis*,
Aspergillus, wie *Aspergillus niger*,
Chaetomium, wie *Chaetomium globosum*,
5 Coniophora, wie *Coniophora puetana*,
Lentinus, wie *Lentinus tigrinus*,
Penicillium, wie *Penicillium glaucum*,
Polyporus, wie *Polyporus versicolor*,
Aureobasidium, wie *Aureobasidium pullulans*,
10 Sclerophoma, wie *Sclerophoma pityophila*,
Trichoderma, wie *Trichoderma viride*,
Escherichia, wie *Escherichia coli*,
Pseudomonas, wie *Pseudomonas aeruginosa*,
Staphylococcus, wie *Staphylococcus aureus*.

15

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/ oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

20

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/ oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im Wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als
30 feste Trägerstoffe kommen infrage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie
35

hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen infrage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Bims, Marmor, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als

5 Emulgier und/oder schaumzeugende Mittel kommen infrage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylaryl-polyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen infrage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

10 Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephalline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

15 Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff,

20 vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen

25 vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen infrage:

Fungizide:

30 2-Phenylphenol; 8-Hydroxychinolinsulfat; Acibenzolar-S-methyl; Aldimorph; Amidoflomet; Ampropylfos; Ampropylfos-potassium; Andoprim; Anilazine; Azaconazole; Azoxystrobin; Benalaxyl; Benodanil; Benomyl; Benthiavalicarb-isopropyl; Benzamacril; Benzamacril-isobutyl; Bilanafos; Binapacryl; Biphenyl; Bitertanol; Blastidicin-S; Bromuconazole; Bupirimate; Buthiobate; Butylamin; Calcium polysulfide; Capsimycin; Captafol; Captan; Carbendazim; Carboxin; Carpropamid; Carvo-

35 ne; Chinomethionat; Chlobenthiazone; Chlorfenazole; Chloroneb; Chlorothalonil; Chlozolate; Clozylacon; Cyazofamid; Cyflufenamid; Cymoxanil; Cyproconazole; Cyprodinil; Cyprofuram; Dag-

ger G; Debacarb; Dichlofluanid; Dichlone; Dichlorophen; Diclocymet; Diclomezine; Dicloran; Diethofencarb; Difenconazole; Diflumetorim; Dimethirimol; Dimethomorph; Dimoxystrobin; Diniconazole; Diniconazole-M; Dinocap; Diphenylamine; Dipyrithione; Ditalimfos; Dithianon; Dodine; Drazoxolon; Edifenphos; Epoxiconazole; Ethaboxam; Ethirimol; Etridiazole; Famoxadone; Fenamidon; Fenapanil; Fenarimol; Fenbuconazole; Fenfuram; Fenhexamid; Fenitropan; Fenoxanil; Fenpiclonil; Fenpropidin; Fenpropimorph; Ferbam; Fluazinam; Flubenzimine; Fludioxonil; Flumetover; Flumorph; Fluoromide; Fluoxastrobin; Fluquinconazole; Flurprimidol; Flusilazole; Flusulfamide; Flutolanil; Flutriafol; Folpet; Fosetyl-Al; Fosetyl-sodium; Fuberidazole; Furalaxyl; Furametpyr; Furecarbanil; Furmecyclox; Guazatine; Hexachlorobenzene; Hexaconazole; Hymexazol; Imazalil; Iminbenconazole; Iminoctadine triacetate; Iminoctadine tris(albesil; Iodocarb; Ipconazole; Iprobenfos; Iprodione; Iprovalicarb; Irumamycin; Isoprothiolane; Isovaledione; Kasugamycin; Kresoxim-methyl; Mancozeb; Maneb; Meferimzone; Mepanipyrim; Mepronil; Metalaxyl; Metalaxyl-M; Metconazole; Methasulfocarb; Methfuroxam; Metiram; Metominostrobin; Metsulfovax; Mildiomycin; Myclobutanil; Myclozolin; Natamycin; Nicobifen; Nitrothal-isopropyl; Noviflumuron; Nuarimol; Ofurace; Orysastrobin; Oxadixyl; Oxolinic acid; Oxpoconazole; Oxycarboxin; Oxyfenthiin; Paclobutrazol; Pefurazoate; Penconazole; Pencycuron; Phosdiphen; Phthalide; Picoxystrobin; Piperalin; Polyoxins; Polyoxorim; Probenazole; Prochloraz; Procymidone; Propamocarb; Propanosine-sodium; Propiconazole; Propineb; Proquinazid; Prothioconazole; Pyraclostrobin; Pyrazophos; Pyrifenox; Pyrimethanil; Pyroquilon; Pyroxyfur; Pyrrolnitrine; Quinconazole; Quinoxifen; Quintozene; Simeconazole; Spiroxamine; Sulfur; Tebuconazole; Tecloftalam; Tecnazene; Tetcyclacis; Tetraconazole; Thiabendazole; Thiocyofen; Thifluzamide; Thiophanate-methyl; Thiram; Tioxymid; Tolclofos-methyl; Tolyfluanid; Triadimefon; Triadimenol; Triazbutil; Triazoxide; Tricyclamide; Tricyclazole; Tridemorph; Trifloxystrobin; Triflumizole; Triforine; Triticonazole; Uniconazole; Validamycin A; Vinclozolin; Zineb; Ziram; Zoxamide; (2S)-N-[2-[4-[[3-(4-Chlorphenyl)-2-propinyl]oxy]-3-methoxyphenyl]ethyl]-3-methyl-2-[(methylsulfonyl)amino]-butanamid; 1-(1-Naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion; 2,3,5,6-Tetrachlor-4-(methylsulfonyl)-pyridin; 2-Amino-4-methyl-N-phenyl-5-thiazolcarboxamid; 2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamid; 3,4,5-Trichlor-2,6-pyridindicarbonitril; Actinovate; cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol; Methyl 1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat; Monokaliumcarbonat; N-(6-Methoxy-3-pyridinyl)-cyclopropanocarboxamid; N-Butyl-8-(1,1-dimethylethyl)-1-oxaspiro[4.5]decan-3-amin; Natriumtetrathiocarbonat; sowie Kupfersalze und -zubereitungen, wie Bordeaux mixture; Kupferhydroxid; Kupfernaphtenat; Kupferoxychlorid; Kupfersulfat; Cufraneb; Kupferoxid; Mancopper; Oxine-copper.

35 **Bakterizide:**

Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Octhilinon,

Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

Insektizide / Akarizide / Nematizide:

- 5 Abamectin, ABG-9008, Acephate, Acequinocyl, Acetamiprid, Acetoprole, Acrinathrin, AKD-1022, AKD-3059, AKD-3088, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb, Allethrin, Allethrin 1R-isomers, Alpha-Cypermethrin (Alphamethrin), Amidoflumet, Aminocarb, Amitraz, Avermectin, AZ-60541, Azadirachtin, Azamethiphos, Azinphos-methyl, Azinphos-ethyl, Azocyclotin, Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis, Bacillus thuringiensis strain EG-2348, Bacillus
- 10 thuringiensis strain GC-91, Bacillus thuringiensis strain NCTC-11821, Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Benzoximate, Beta-Cyfluthrin, Beta-Cypermethrin, Bifenazate, Bifenthrin, Binapacryl, Bioallethrin, Bioallethrin-S-cyclopentyl-isomer, Bioethanomethrin, Biopermethrin, Bioresmethrin, Bistrifluron, BPMC, Brofenprox, Bromophos-ethyl, Bromopropylate, Bromfenvinfos (-methyl), BTG-504, BTG-505, Bufencarb, Buprofezin, Buta-
- 15 thiofos, Butocarboxim, Butoxycarboxim, Butylpyridaben, Cadusafos, Camphechlor, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, CGA-50439, Chinomethionat, Chlordane, Chlordimeform, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorobenzilate, Chloropicrin, Chlorproxyfen, Chlorpyrifos-methyl, Chlorpyrifos (-ethyl), Chlovaporthrin, Chromafenozide, Cis-Cypermethrin, Cis-Resmethrin, Cis-Permethrin, Clocythrin,
- 20 Cloethocarb, Clofentezine, Clothianidin, Clothiazoben, Codlemone, Coumaphos, Cyanofenphos, Cyanophos, Cycloprene, Cycloprothrin, Cydia pomonella, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyphenothrin (1R-trans-isomer), Cyromazine, DDT, Deltamethrin, Demeton-S-methyl, Demeton-S-methylsulphon, Diafenthiuron, Dialifos, Diazinon, Dichlofenthion, Dichlorvos, Dicofol, Dicrotophos, Dicyclanil, Diflubenzuron, Dimethoate, Dimethylvinphos, Dinobuton, Dinocap, Dino-
- 25 tefuran, Diofenolan, Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn, DOWCO-439, Eflusilanate, Ema-mectin, Emaectin-benzoate, Empenthrin (1R-isomer), Endosulfan, Entomophthora spp., EPN, Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethiprole, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimfos, Famphur, Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatin oxide, Fenfluthrin, Fenitrothion, Fenobucarb, Fenothiocarb, Fenoxacrim, Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fensulfothion,
- 30 Fenthion, Fentrifanil, Fenvalerate, Fipronil, Flonicamid, Fluacrypyrim, Fluazuron, Flubenzimine, Flubrocylthrin, Flucycloxuron, Flucythrinate, Flufenerim, Flufenoxuron, Flufenprox, Flumethrin, Flupyrzofos, Flutenzin (Flufenzine), Fluvalinate, Fonofos, Formetanate, Formothion, Fosmethilan, Fosthiazate, Fubfenprox (Fluproxyfen), Furathiocarb, Gamma-HCH, Gossyplure, Grandlure, Granu-
- 35 loseviren, Halfenprox, Halofenozide, HCH, HCN-801, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydramethylnone, Hydroprene, IKA-2002, Imidacloprid, Imiprothrin, Indoxacarb, Iodofenphos, Iprobenfos, Isazofos, Isofenphos, Isoprocarb, Isoxathion, Ivermectin, Japonilure, Kadethrin, Kern-

polyederviren, Kinoprene, Lambda-Cyhalothrin, Lindane, Lufenuron, Malathion, Mecarbam, Mesulfenfos, Metaldehyd, Metam-sodium, Methacrifos, Methamidophos, Metharhizium anisopliae, Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoprene, Methoxychlor, Methoxyfenozide, Metolcarb, Metoxadiazon, Mevinphos, Milbemectin, Milbemycin, MKI-245, 5 MON-45700, Monocrotophos, Moxidectin, MTI-800, Naled, NC-104, NC-170, NC-184, NC-194, NC-196, Niclosamide, Nicotine, Nitenpyram, Nithiazine, NNI-0001, NNI-0101, NNI-0250, NNI-9768, Novaluron, Noviflumuron, OK-5101, OK-5201, OK-9601, OK-9602, OK-9701, OK-9802, Omethoate, Oxamyl, Oxydemeton-methyl, Paecilomyces fumosoroseus, Parathion-methyl, Parathion (-ethyl), Permethrin (cis-, trans-), Petroleum, PH-6045, Phenothrin (1R-trans isomer), Phenthoate, 10 Phorate, Phosalone, Phosmet, Phosphamidon, Phosphocarb, Phoxim, Piperonyl butoxide, Pirimicarb, Pirimiphos-methyl, Pirimiphos-ethyl, Prallethrin, Profenofos, Promecarb, Propaphos, Propargite, Propetamphos, Propoxur, Prothiofos, Prothoate, Protrifenbute, Pymetrozine, Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridalyl, Pyridaphenthion, Pyridathion, Pyrimidifen, Pyriproxyfen, Quinalphos, Resmethrin, RH-5849, Ribavirin, RU-12457, RU-15525, S-421, S-1833, Salithion, 15 Sebufos, SI-0009, Silafluofen, Spinosad, Spirodiclofen, Spiromesifen, Sulfluramid, Sulfotep, Sulprofos, SZI-121, Tau-Fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimfos, Teflubenzuron, Tefluthrin, Temephos, Temvinphos, Terbam, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Tetradifon, Tetramethrin, Tetramethrin (1R-isomer), Tetrasul, Theta-Cypermethrin, Thiacloprid, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatrithos, Thiocyclam hydrogen oxalate, Thiodicarb, Thiofanox, Thiometon, Thiosultap-sodium, 20 Thuringiensin, Tolfenpyrad, Tralocyrin, Tralomethrin, Transfluthrin, Triarathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb, Vamidothion, Vanilprole, Verbutin, Verticillium lecanii, WL-108477, WL-40027, YI-5201, YI-5301, YI-5302, XMC, Xylcarb, ZA-3274, Zeta-Cypermethrin, Zolaprofos, ZXI-8901, die Verbindung 3-Methylphenyl-propylcarbam (Tsumacide Z), die Verbindung 3-(5-Chlor-3-pyridinyl)-8-(2,2,2-trifluor-ethyl)-8-azabicyclo[3.2.1]octan-3-carbonitril (CAS-Reg.-Nr. 185982-80-3) und das entsprechende 3-endo-Isomere (CAS-Reg.-Nr. 185984-60-5) (vgl. WO-96/37494, WO-98/25923), sowie Präparate, 25 welche insektizid wirksame Pflanzenextrakte, Nematoden, Pilze oder Viren enthalten.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und 30 Wachstumsregulatoren, Safener bzw. Semiochemicals ist möglich.

Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites antimykotisches Wirkungsspektrum, insbesondere gegen Dermatophyten und Sprosspilze, Schimmel und diphasische Pilze (z.B. gegen 35 Candida-Spezies wie Candida albicans, Candida glabrata) sowie Epidermophyton floccosum, Aspergillus-Spezies wie Aspergillus niger und Aspergillus fumigatus, Trichophyton-Spezies wie

Trichophyton mentagrophytes, Microsporon-Spezies wie Microsporon canis und audouinii. Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfassbaren mykotischen Spektrums dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

- 5 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen
10 gen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

- Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der Behandlung von
15 Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1.000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10.000 g/ha,
20 vorzugsweise zwischen 1 und 5.000 g/ha.

- Wie bereits oben erwähnt, können erfindungsgemäß alle Pflanzen und deren Teile behandelt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform werden wild vorkommende oder durch konventionelle biologische Zuchtmethoden, wie Kreuzung oder Protoplastenfusion erhaltenen Pflanzenarten und
25 Pflanzensorten sowie deren Teile behandelt. In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform werden transgene Pflanzen und Pflanzensorten, die durch gentechnologische Methoden gegebenenfalls in Kombination mit konventionellen Methoden erhalten wurden (Genetically Modified Organisms) und deren Teile behandelt. Der Begriff „Teile“ bzw. „Teile von Pflanzen“ oder „Pflanzenteile“ wurde oben erläutert.

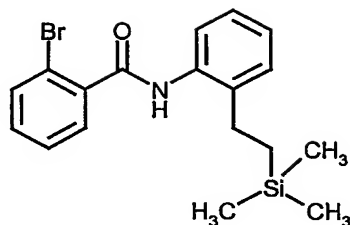
30

- Besonders bevorzugt werden erfindungsgemäß Pflanzen der jeweils handelsüblichen oder in Gebrauch befindlichen Pflanzensorten behandelt. Unter Pflanzensorten versteht man Pflanzen mit neuen Eigenschaften („Traits“), die sowohl durch konventionelle Züchtung, durch Mutagenese oder durch rekombinante DNA-Techniken gezüchtet worden sind. Dies können Sorten, Rassen, Bio- und
35 Genotypen sein.

Je nach Pflanzenarten bzw. Pflanzensorten, deren Standort und Wachstumsbedingungen (Böden, Klima, Vegetationsperiode, Ernährung) können durch die erfindungsgemäße Behandlung auch überadditive („synergistische“) Effekte auftreten. So sind beispielsweise erniedrigte Aufwandmengen und/oder Erweiterungen des Wirkungsspektrums und/oder eine Verstärkung der Wirkung der erfindungsgemäß verwendbaren Stoffe und Mittel, besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte möglich, die über die eigentlich zu erwartenden Effekte hinausgehen.

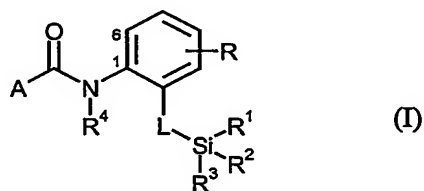
Zu den bevorzugten erfindungsgemäß zu behandelnden transgenen (gentechnologisch erhaltenen) Pflanzen bzw. Pflanzensorten gehören alle Pflanzen, die durch die gentechnologische Modifikation genetisches Material erhielten, welches diesen Pflanzen besondere vorteilhafte wertvolle Eigenschaften („Traits“) verleiht. Beispiele für solche Eigenschaften sind besseres Pflanzenwachstum, erhöhte Toleranz gegenüber hohen oder niedrigen Temperaturen, erhöhte Toleranz gegen Trockenheit oder gegen Wasser- bzw. Bodensalzgehalt, erhöhte Blühleistung, erleichterte Ernte, Beschleunigung der Reife, höhere Ernteerträge, höhere Qualität und/oder höherer Ernährungswert der Ernteprodukte, höhere Lagerfähigkeit und/oder Bearbeitbarkeit der Ernteprodukte. Weitere und besonders hervorgehobene Beispiele für solche Eigenschaften sind eine erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen tierische und mikrobielle Schädlinge, wie gegenüber Insekten, Milben, pflanzenpathogenen Pilzen, Bakterien und/oder Viren sowie eine erhöhte Toleranz der Pflanzen gegen bestimmte herbizide Wirkstoffe. Als Beispiele transgener Pflanzen werden die wichtigen Kulturpflanzen, wie Getreide (Weizen, Reis), Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Tabak, Raps sowie Obstpflanzen (mit den Früchten Äpfel, Birnen, Zitrusfrüchten und Weintrauben) erwähnt, wobei Mais, Soja, Kartoffel, Baumwolle, Tabak und Raps besonders hervorgehoben werden. Als Eigenschaften („Traits“) werden besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr der Pflanzen gegen Insekten, Spinnentiere, Nematoden und Schnecken durch in den Pflanzen entstehende Toxine, insbesondere solche, die durch das genetische Material aus *Bacillus Thuringiensis* (z.B. durch die Gene CryIA(a), CryIA(b), CryIA(c), CryIIA, CryIIIA, CryIIIB2, Cry9c, Cry2Ab, Cry3Bb und CryIF sowie deren Kombinationen) in den Pflanzen erzeugt werden (im Folgenden „Bt Pflanzen“). Als Eigenschaften („Traits“) werden auch besonders hervorgehoben die erhöhte Abwehr von Pflanzen gegen Pilze, Bakterien und Viren durch Systemische Akquirierte Resistenz (SAR), Systemin, Phytoalexine, Elicitoren sowie Resistenzgene und entsprechend exprimierte Proteine und Toxine. Als Eigenschaften („Traits“) werden weiterhin besonders hervorgehoben die erhöhte Toleranz der Pflanzen gegenüber bestimmten herbiziden Wirkstoffen, z.B. Imidazolinonen, Sulfonylharnstoffen, Glyphosate oder Phosphinotricin (z.B. "PAT"-

- Gen). Die jeweils die gewünschten Eigenschaften („Traits“) verleihenden Gene können auch in Kombinationen miteinander in den transgenen Pflanzen vorkommen. Als Beispiele für „Bt Pflanzen“ seien Maissorten, Baumwollsorten, Sojasorten und Kartoffelsorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen YIELD GARD® (z.B. Mais, Baumwolle, Soja), KnockOut® (z.B. Mais), StarLink® (z.B. Mais), Bollgard® (Baumwolle), Nucoton® (Baumwolle) und NewLeaf® (Kartoffel) vertrieben werden. Als Beispiele für Herbizid tolerante Pflanzen seien Maissorten, Baumwollsorten und Sojasorten genannt, die unter den Handelsbezeichnungen Roundup Ready® (Toleranz gegen Glyphosate z.B. Mais, Baumwolle, Soja), Liberty Link® (Toleranz gegen Phosphinotricin, z.B. Raps), IMI® (Toleranz gegen Imidazolinone) und STS® (Toleranz gegen Sulfonylharnstoffe z.B. Mais) vertrieben werden. Als Herbizid resistente (konventionell auf Herbizid-Toleranz gezüchtete) Pflanzen seien auch die unter der Bezeichnung Clearfield® vertriebenen Sorten (z.B. Mais) erwähnt. Selbstverständlich gelten diese Aussagen auch für in der Zukunft entwickelte bzw. zukünftig auf den Markt kommende Pflanzensorten mit diesen oder zukünftig entwickelten genetischen Eigenschaften („Traits“).
- 15 Die aufgeführten Pflanzen können besonders vorteilhaft erfindungsgemäß mit den Verbindungen der allgemeinen Formel (I) bzw. den erfindungsgemäßen Wirkstoffmischungen behandelt werden. Die bei den Wirkstoffen bzw. Mischungen oben angegebenen Vorzugsbereiche gelten auch für die Behandlung dieser Pflanzen. Besonders hervorgehoben sei die Pflanzenbehandlung mit den im vorliegenden Text speziell aufgeführten Verbindungen bzw. Mischungen.
- 20 Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den folgenden Beispielen hervor.

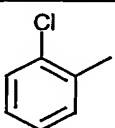
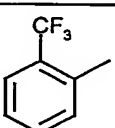
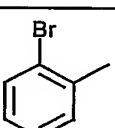
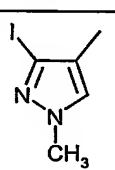
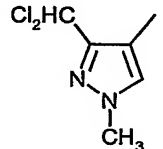
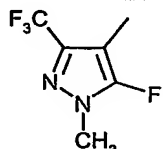
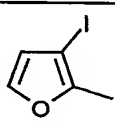
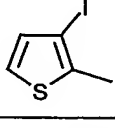
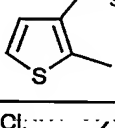
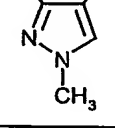
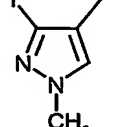
HerstellungsbeispieleBeispiel 1

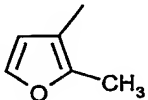
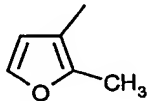
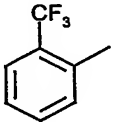
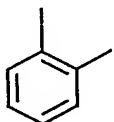
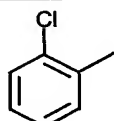
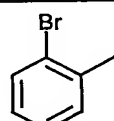
- 5 425 mg 2-(2-Trimethylsilyl-ethyl)-phenylamin (2.2 mmol) und 438 mg (2.0 mmol) 2-Brombenzoylchlorid wurden in 20 ml Acetonitril gelöst und 332 mg (2.4 mmol) Kaliumcarbonat zugegeben. Das Reaktionsgemisch wurde 18 h bei Raumtemperatur gerührt, dann 20 ml Wasser zugegeben und mit Essigsäureethylester extrahiert und über Natriumsulfat getrocknet. Nach Entfernung des Lösungsmittels und säulenchromatographischer Reinigung über Kieselgel 60 (Laufmittel: Methylenchlorid)
- 10 wurden 405 mg (54 % der Theorie) an 2-Brom-N-[2-(2-trimethylsilyl-ethyl)-phenyl]-benzamid erhalten [LogP (pH 2.3) = 4.32].

- Analog Beispiel 1 sowie entsprechend den Angaben in der allgemeinen Beschreibung der erfindungsgemäßen Herstellverfahren (a) und (b) wurden auch die in der nachstehenden Tabelle 1 genannten
- 15 Verbindungen der Formel (I) erhalten:

Table 1

Bsp.	R	L	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	A	logP
2	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.67
3	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.63
4	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.40

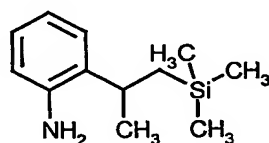
Bsp.	R	L	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	A	logP
5	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.29
6	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.37
7	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.58
8	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		3.68
9	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		3.95
10	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.19
11	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.73
12	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		5.05
13	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.43
14	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		3.89
15	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		3.94

Bsp.	R	L	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	A	logP
16	H	*-CH ₂ -CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.03
17	H	*-CH(CH ₃)-CH ₂ -#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.33
18	H	*-CH≡CH-#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.78
19	H	*-CH≡CH-#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.97
20	H	*-CH≡CH-#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.96
21	H	*-CH≡CH-#	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H		4.93

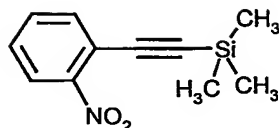
Die mit Stern (*) markierte Bindung ist mit dem Anilinrest verknüpft, die mit Raute (#) markierte Bindung mit dem Silicium-Substituenten verbunden.

5 Herstellung von Ausgangsstoffen der Formel (III)

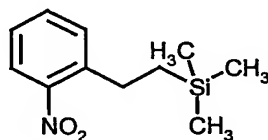
Beispiel (III-1)



- 17.7 g Anilin (0.19 mol), 50 g Allyltrimethylsilan (0.44 mol), 1.5 g Aluminiumtrichlorid (0.01 mol) und 0.5 g Aluminiumpulver (0.02 mol) wurden gemischt und im Autoklaven für 10 h bei 255°C gerührt. Nach Abkühlen auf Raumtemperatur wurden zuerst 100 ml Toluol, dann 40 ml einer 40%igen NaOH-Lösung in Wasser und 100 ml Wasser zugegeben und 15 min bei 35°C gerührt. Nach dem Abkühlen wurde mit Toluol extrahiert, mit Wasser gewaschen, über Kaliumcarbonat getrocknet und das Lösungsmittel im Vakuum entfernt. Nach Destillation (55°C-60°C, 0.08 mbar) erhielt man 1.4 g 2-(1-Methyl-2-trimethylsilyl-ethyl)-phenylamin [LogP (pH 2.3) = 3.05].

Beispiel (III-2)*Stufe 1*

- 4 g (20 mmol) ortho-Bromnitrobenzol, 842 mg (1.2 mmol) Bis(triphenylphosphin)palladium(II)chlorid und 230 mg (1.2 mmol) Kupfer(I)iodid wurden in 40 ml Triethylamin unter Argon vorgelegt. Anschließend wurde bei Raumtemperatur innerhalb von 10 min 2.95 g (30 mmol) Trimethylsilylacetylen zugetropft und 2 Tage bei Raumtemperatur gerührt. Das Reaktionsgemisch wurde auf 50 ml Wasser gegossen, 3 mal mit je 50 ml Diethylether extrahiert, über Natriumsulfat getrocknet und eingedampft. Nach säulenchromatographischer Reinigung über Kieselgel 60 (Laufmittel: Cyclohexan/Ethylacetat 3:1) wurden 4.2 g (96 % der Theorie) an Trimethyl-(2-nitro-phenylethynyl)-silan erhalten [LogP (pH 2.3) = 4.12].

Stufe 2

- 10.9 g (50 mmol) Trimethyl-(2-nitro-phenylethynyl)-silan wurden in 200 ml Methanol gelöst und 0.5 g Palladium-Kohle (5 %) zugegeben. Anschließend wurde im Autoklaven 12 h bei 4 bar hydriert. Nach Entfernung des Lösungsmittels und säulenchromatographischer Reinigung über Kieselgel 60 (Laufmittel: Methylenchlorid) wurden 4.1 g an 2-(2-Trimethylsilyl-ethyl)-phenylamin erhalten [LogP (pH 2.3) = 2.58].

Die Bestimmung der angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

- 25 Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich (pH 2,3): 0,1 % wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril.

Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren LogP-Werte bekannt sind (Bestimmung der LogP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

- 30 Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

Anwendungsbeispiele

Beispiel A

5 **Venturia-Test (Apfel) / protektiv**

Lösungsmittel : 24,5 Gewichtsteile Aceton
 24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid
Emulgator : 1 Gewichtsteil Alkyl-Aryl-Polyglykolether

10

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

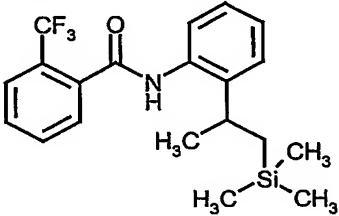
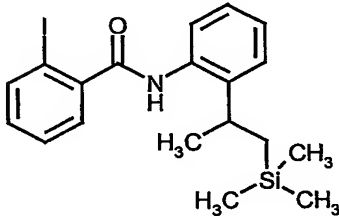
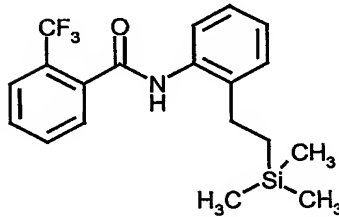
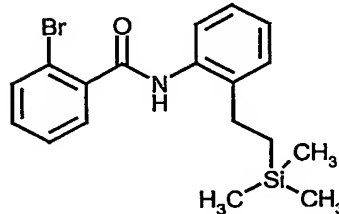
15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers *Venturia inaequalis* inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

20 Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 21°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 90 % aufgestellt.

25 10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Tabelle A

Venturia-Test (Apfel) / protektiv

Wirkstoff Erfindungsgemäß	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
	100	99
	100	100
	100	84
	100	87

Beispiel B

Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

- 5 Lösungsmittel: 49 Gewichtsteile N, N-Dimethylformamid
 Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

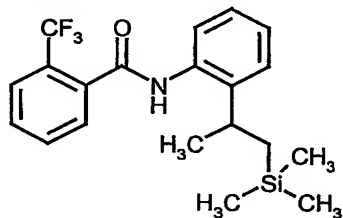
15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Gurkenpflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer Sporensuspension von *Sphaerotheca fuliginea* inokuliert. Anschließend werden die Pflanzen in einem Gewächshaus bei 70 % relativer Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 23°C aufgestellt.

20 7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Tabelle B

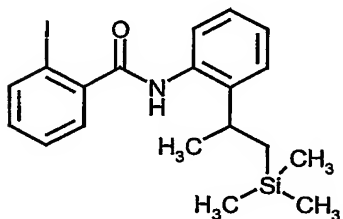
Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Wirkstoff Erfindungsgemäß	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
------------------------------	--------------------------------------	----------------------



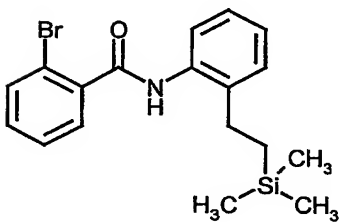
750

100



750

100



750

100

Beispiel C

Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

- 5 Lösungsmittel: 50 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid
 Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

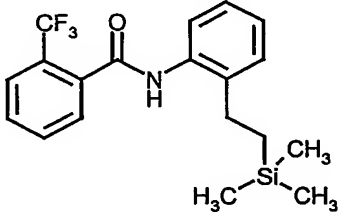
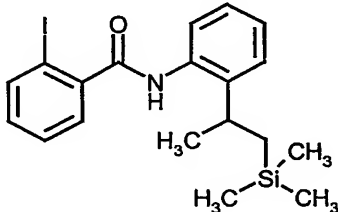
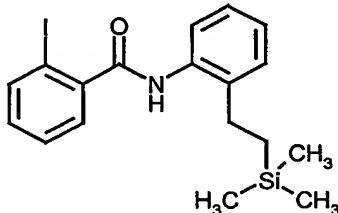
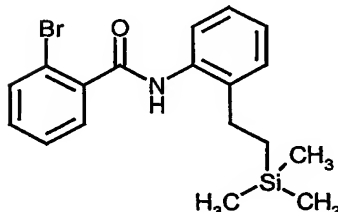
15 Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von *Puccinia recondita* besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.

20 10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

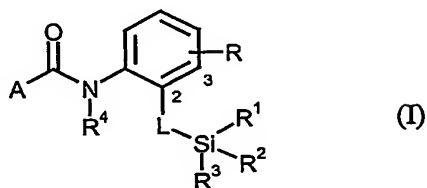
Tabelle C

Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

Wirkstoff Erfindungsgemäß	Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	Wirkungsgrad in %
	500	93
	500	100
	500	100
	500	100

Patentansprüche

1. Silylierte Carboxamide der Formel (I)



5 in welcher

R für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, iso-Propyl, Methylthio oder Trifluormethyl steht,

L für eine direkte Bindung oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes geradkettiges oder verzweigtes Alkylen (Alkandiyl), Alkenylen (Alkendiyl) oder Alkinylen (Alkindiyl) steht,

R¹ und R² unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄-alkyl oder C₁-C₆-Halogenalkyl stehen,

R³ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkylthio-C₁-C₄-alkyl, C₂-C₈-Alkenyl, C₂-C₈-Alkynyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₂-C₆-Halogenalkenyl, C₂-C₆-Halogenalkinyl, C₃-C₆-Cycloalkyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Phenyl oder Phenylalkyl steht,

R⁴ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; Halogen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;

(C₁-C₈-Alkyl)carbonyl, (C₁-C₈-Alkoxy)carbonyl, (C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Cycloalkyl)carbonyl; (C₁-C₆-Halogenalkyl)carbonyl, (C₁-C₆-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Halogenocycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R⁵, -CONR⁶R⁷ oder -CH₂NR⁸R⁹ steht,

R⁵ für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₈-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₆-Halogenalkoxy, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-

C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

R⁶ und R⁷ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₈-Halogenalkyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

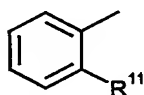
R⁶ und R⁷ außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹⁰ enthalten kann,

R⁸ und R⁹ unabhängig voneinander für Wasserstoff, C₁-C₈-Alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₈-Halogenalkyl, C₃-C₈-Halogencycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen,

R⁸ und R⁹ außerdem gemeinsam mit dem Stickstoffatom, an das sie gebunden sind, einen gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen oder C₁-C₄-Alkyl substituierten gesättigten Heterocyclus mit 5 bis 8 Ringatomen bilden, wobei der Heterocyclus 1 oder 2 weitere, nicht benachbarte Heteroatome aus der Reihe Sauerstoff, Schwefel oder NR¹⁰ enthalten kann,

R¹⁰ für Wasserstoff oder C₁-C₆-Alkyl steht,

A für den Rest der Formel (A1)

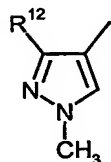


(A1) steht, in welcher

R¹¹ für Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Cyano, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkylthio mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für den Rest der Formel (A2)

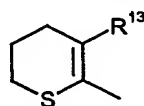


(A2) steht, in welcher

R¹² für Chlor, Iod oder Dichlormethyl steht,

oder

A für den Rest der Formel (A3)



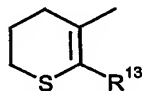
(A3) steht, in welcher

R^{13} für C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

5

A für den Rest der Formel (A4)

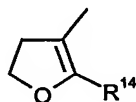


(A4) steht, in welcher

R^{13} für C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für den Rest der Formel (A5)

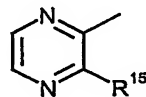


(A5) steht, in welcher

R^{14} für C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für den Rest der Formel (A6)

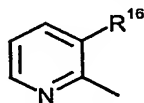


(A6) steht, in welcher

R^{15} für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₄-Alkyl oder C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für den Rest der Formel (A7)

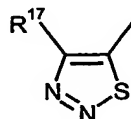


(A7) steht, in welcher

R^{16} für Halogen, Hydroxy, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio oder C₁-C₄-Halogenalkoxy mit jeweils 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für den Rest der Formel (A8)



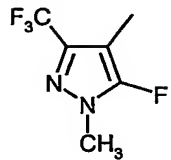
(A8) steht, in welcher

R^{17} für C₁-C₄-Alkyl steht,

25

oder

A für den Rest der Formel (A9)

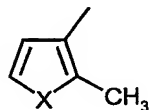


(A9) steht,

oder

5

A für den Rest der Formel (A10)



(A10) steht, in welcher

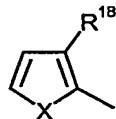
in welcher

X für O (Sauerstoff) oder S (Schwefel) steht,

oder

10

A für den Rest der Formel (A11)



(A11) steht, in welcher

in welcher

X für O (Sauerstoff) oder S (Schwefel) steht,

R¹⁸ für Iod oder Methyl steht.

15

2. Verfahren zum Herstellen von silylierten Carboxamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man

- a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



(II)

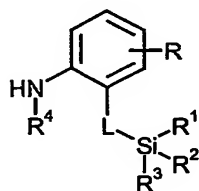
20

in welcher

X¹ für Halogen oder Hydroxy steht und

A die oben angegebenen Bedeutungen hat,

mit Aminen der Formel (III)

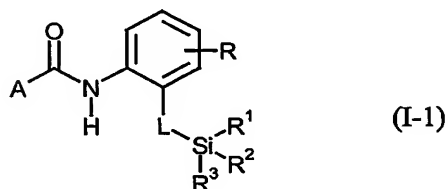


(III)

in welcher R, L, R¹, R², R³ und R⁴ die oben angegebenen Bedeutungen haben, gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Kondensationsmittels, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt,

5 oder

b) silylierte Carboxamide der Formel (I-1)



in welcher R, L, R¹, R², R³ und A die oben angegebenen Bedeutungen haben, mit Halogeniden der Formel (VIII)



in welcher

X² für Chlor, Brom oder Iod steht,

R^{4a} für C₁-C₈-Alkyl, C₁-C₆-Alkylsulfinyl, C₁-C₆-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Cycloalkyl; C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylsulfinyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₃-C₈-Halogenocycloalkyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; Formyl, Formyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkyl)-carbonyl-C₁-C₃-alkyl, (C₁-C₃-Alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl; Halogen-(C₁-C₃-alkyl)carbonyl-C₁-C₃-alkyl, Halogen-(C₁-C₃-alkoxy)carbonyl-C₁-C₃-alkyl mit jeweils 1 bis 13 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen;

(C₁-C₈-Alkyl)carbonyl, (C₁-C₈-Alkoxy)carbonyl, (C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Cycloalkyl)carbonyl; (C₁-C₆-Halogenalkyl)carbonyl, (C₁-C₆-Halogenalkoxy)carbonyl, (Halogen-C₁-C₄-alkoxy-C₁-C₄-alkyl)carbonyl, (C₃-C₈-Halogenocycloalkyl)carbonyl mit jeweils 1 bis 9 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen; oder -C(=O)C(=O)R⁵, -CONR⁶R⁷ oder -CH₂NR⁸R⁹ steht, wobei R⁵, R⁶, R⁷, R⁸ und R⁹ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

in Gegenwart einer Base und in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umgesetzt.

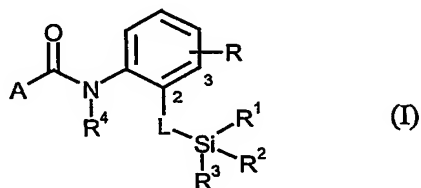
30 3. Mittel zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem silylierten Carboxanilid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.

4. Verwendung von silylierten Carboxamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen.
- 5 5. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man silylierten Carboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.
- 10 6. Verfahren zur Herstellung von Mitteln zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man silylierten Carboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.

Silylierte Carboxamide

Zusammenfassung

Neue silylierte Carboxamide der Formel (I)



in welcher

R, L, R¹, R², R³, R⁴ und A die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben,

mehrere Verfahren zum Herstellen dieser Verbindungen und ihre Verwendung zum Bekämpfen unerwünschter Mikroorganismen.